





Electrolytic plate stack cell

Patent number: DE19533773
Publication date: 1997-03-13
Inventor: PUETTER HERMANN DR (DE); HANNEBAUM HEINZ (DE)
Applicant: BASF AG (DE)
Classification:
- **international:** C25B11/12; C25B3/00; C07C43/205; C07C43/307; C07C43/315; C07C217/40
- **european:** C25B3/00; C25B9/20; C25B11/03; C25B11/12
Application number: DE19951033773 19950912
Priority number(s): DE19951033773 19950912

Also published as:

 WO9710370 (A1)
 EP0853688 (A1)
 US6077414 (A1)
 EP0853688 (B1)

Report a data error here

Abstract of DE19533773

A plate stack cell with series-connected stack electrodes in which at least one stack electrode consists of a graphite felt plate, a carbon felt plate, a fabric with a carbon-coated educt contact surface or a porous solid with a carbon-coated educt contact surface or contains such a material.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 195 33 773 A 1**

⑤1 Int. Cl.⁶:
C 25 B 11/12
C 25 B 3/00
C 07 C 43/205
C 07 C 43/307
C 07 C 43/315
C 07 C 217/40

②1 Aktenzeichen: 195 33 773.5
②2 Anmeldetag: 12. 9. 95
④3 Offenlegungstag: 13. 3. 97

DE 195 33 773 A 1

⑦1 Anmelder:
BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

⑦4 Vertreter:
Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Frohwitter,
Geissler & Partner Patent- und Rechtsanwälte, 81679
München

⑦2 Erfinder:
Pütter, Hermann, Dr., 67433 Neustadt, DE;
Hannebaum, Heinz, 67069 Ludwigshafen, DE

⑤4 Plattenstapelzelle

⑤7 Plattenstapelzelle mit seriell geschalteten Stapelelektroden, wobei mindestens eine Stapelelektrode aus einer Graphitfilzplatte, einer Kohlefilzplatte, einem Gewebe mit Kohlenstoff-bedeckter Eduktkontaktfläche oder einem porösen Festkörper mit Kohlenstoff-bedeckter Eduktkontaktfläche besteht oder ein solches Material enthält.

DE 195 33 773 A 1

Beschreibung

Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf eine neuartige Plattenstapelzelle und auf ein Verfahren zur Elektrolyse von Stoffen.

Elektrolysezellen werden in der modernen Chemie in einer Vielfalt von Gestaltungen für eine Vielzahl von Aufgaben eingesetzt. Ein Überblick über die Konstruktionsmöglichkeiten von Elektrolysezellen findet sich zum Beispiel in D. Pletcher, F. Walsh, *Industrial Electrochemistry*, 2. Auflage, 1990, London, S. 60ff.

Eine häufig benutzte Form von Elektrolysezellen ist die Plattenstapelzelle. Eine einfache Anordnung davon ist die Kapillarspaltzelle. Häufig werden dabei die Elektroden und entsprechende Trennelemente filterpressenartig angeordnet. Bei diesem Zellentyp sind mehrere Elektrodenplatten parallel zueinander angeordnet und durch Abstandsmedien wie Abstandhalter oder Diaphragmen getrennt. Die Zwischenräume sind mit einer oder mehreren Elektrolytphasen gefüllt. Eine sogenannte ungeteilte Zelle beinhaltet meist nur eine Elektrolytphase, eine geteilte Zelle weist zwei oder mehrere solcher Phasen auf. In aller Regel sind die den Elektroden benachbarten Phasen flüssig. Es können aber auch sogenannte Festkörperelektrolyten wie Ionenaustauschermembranen als Elektrolytphasen eingesetzt werden. Wird die Elektrode dabei direkt auf die Ionenaustauschermembran aufgebracht, z. B. in Form einer elektrokatalytischen und feinporösen Schicht, so sind zusätzliche Kontaktierungen nötig, die einerseits als Stromkollektoren, andererseits als Stofftransportförderer ausgebildet sein müssen. Die einzelnen Elektroden können parallel (monopolar) oder seriell (bipolar) geschaltet werden. Im Rahmen der Erfindung werden ausschließlich Zellen mit bipolarer Schaltung der Stapel Elektroden betrachtet.

Um einen möglichst hohen Stoffumsatz in Elektrolysezellen zu erreichen, soll der Elektrolyt nach allgemeiner Lehre derart an die Elektroden herangeführt werden, daß ein optimaler Stofftransport erreicht wird. Bei Flüssigelektrolyten wird häufig vorgeschlagen, die Elektrolytflüssigkeit parallel zu den Elektroden strömen zu lassen.

Die Raum-Zeit-Ausbeute und die Selektivität der Elektrolyse hängen neben der Anströmung der Elektroden auch von den verwendeten Elektrodenmaterialien ab. Diese beeinflussen Haltbarkeit, Größe und Gewicht der Zelle maßgeblich.

In bekannten Plattenstapelzellen werden die Elektroden in der Regel als massive Platten, zum Beispiel Graphitscheiben ausgebildet. Derartige Elektroden haben vielfältige Nachteile, die sich aus der Massivität des Materials ergeben, zum Beispiel die gegenüber einem porösen Material verminderte Oberfläche und den damit einhergehenden verminderten Stoffumsatz, höheres Gewicht und größeren Raumbedarf.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist somit die Bereitstellung einer Plattenstapelzelle mit erhöhter Raum-Zeit-Ausbeute, hoher Selektivität, geringem Gewicht und Raumbedarf, die möglichst einfach herzustellen und zu betreiben ist. Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist die Bereitstellung von Elektrolyseverfahren mit hoher Raum-Zeit-Ausbeute und hoher Selektivität.

Diese Aufgaben werden durch die in den Ansprüchen beschriebene Plattenstapelzelle und die beschriebenen Verfahren gelöst.

Im Rahmen der Erfindung wird eine Plattenstapelzelle mit seriell (bipolar) geschalteten Stapelelektroden be-

reitgestellt, wobei mindestens eine Stapelelektrode aus einer Graphitfilzplatte, einer Kohlefilzplatte, einem Gewebe mit Kohlenstoff-bedeckter Eduktkontaktfläche oder einem porösen Festkörper mit Kohlenstoff-bedeckter Eduktkontaktfläche besteht oder ein solches Material enthält.

Zur Verwendung im Rahmen der vorliegenden Erfindung geeignete Filze sind im Handel erhältlich. Dabei können sowohl Graphitfilze wie auch Kohlefilze eingesetzt werden, wobei sich beide Filzarten vor allem durch die Struktur des Kohlenstoffs unterscheiden. Statt oder neben den beschriebenen Filzen können auch andere poröse Materialien verwendet werden, deren Kontaktflächen mit dem Edukt vollständig oder weitgehend mit Kohlenstoff bedeckt sind. Kontaktflächen sind dabei diejenigen äußeren und inneren Oberflächen, mit denen das zu elektrolysierende Edukt bei der Elektrolysereaktion in Kontakt kommt. Diese Materialien können dabei vollständig aus Kohlenstoff bestehen wie etwa Kohlenstoffgewebe, Kohlenstoffnetze oder poröse Kohlenstoffkörper. Es können aber auch Träger aus anderen Materialien verwendet werden, deren Kontaktfläche mit dem Edukt ganz oder überwiegend mit Kohlenstoff bedeckt ist.

Die Elektrode kann ganz aus den genannten Materialien gefertigt sein oder eine oder mehrere weitere Schichten aufweisen. Diese Schichten können zum Beispiel der Stabilität der Anordnung dienen.

Vorzugsweise ist die Plattenstapelzelle, insbesondere die Elektroden selbst und der Elektrolyt, so gestaltet, daß möglichst wenig, im Idealfall keine Elektrolytionen aufgrund des elektrischen Potentialgefälles durch die oben beschriebene erfindungsgemäße kohlenstoffhaltige Stapelelektrode wandern. Der Strom innerhalb der Elektrode soll möglichst ausschließlich durch Elektroden, nicht durch Ionen bewirkt werden. Je nach den gegebenen Elektrolysebedingungen, insbesondere dem verwendeten Elektrolyten, kann es sogar nötig sein, diese Wanderung von Elektrolytionen durch die kohlenstoffhaltigen Stapelelektroden hindurch zu beschränken oder zu unterbinden, um eine nennenswerte Elektrolysereaktion an diesen Stapelelektroden zu erzielen.

Das kann dadurch erreicht werden, daß die oben beschriebene kohlenstoffhaltige Stapelelektrode von einem Festkörperelektrolyten umgeben ist. Als Festkörperelektrolyt kann grundsätzlich jedes für diese Funktion bekannte Material verwendet werden. Bevorzugt werden Ionenaustauschermembranen eingesetzt.

Dabei wird neben dem Festkörperelektrolyten auch eine flüssige Elektrolytphase verwendet, die die Elektrolyseprodukte enthält. Diese flüssige Phase enthält vorzugsweise keine freien Leitungsionen oder nur noch geringe Mengen davon. Damit wird ausschließlich oder nahezu ausschließlich ein elektronischer Strom in der Elektrode erreicht. Der ionische Strom zwischen den Elektroden wird dann ganz oder weitgehend von Ionen dargestellt, die in dem Festkörperelektrolyten gebunden, d. h. sich nicht aufgrund des Potentialgefälles durch die kohlenstoffhaltige Stapelelektrode hindurch frei bewegen.

Für die Verwendung neben Festkörperelektrolyten geeignete Elektrolytflüssigkeiten enthalten weniger als 10 Gew.-% Leitsalze, vorzugsweise weniger als 3 Gew.-%. Bevorzugte Lösemittel sind organische Stoffe wie Methanol, Ethanol, DMF, Essigsäure, Ameisensäure oder Acetonitril.

Die Stapelelektroden können auch durch elektrolytgefüllte Festkörper voneinander getrennt werden. Als

elektrolytgefüllter Festkörper kann insbesondere ein elektrolytgefülltes Gewebe oder Netz oder ein Diaphragma verwendet werden.

Die Unterbindung der Elektrolytionenwanderung gemäß dem Potentialgefälle durch die Stapelelektrode hindurch kann dabei dadurch behindert oder unterbunden werden, daß die oben beschriebene kohlenstoffhaltige Stapelelektrode eine zusätzliche, die Wanderung der Elektrolytionen gemäß dem Potentialgefälle durch diese Elektrode behindernde oder verhindernde Schicht enthält. Diese Schicht besteht vorzugsweise aus Graphitpappe. Es können aber auch Metallfolien eingesetzt werden. Diese Maßnahmen können unabhängig von der Beschaffenheit des Elektrolyten getroffen werden, also auch zusätzlich zu einem Festkörperelektrolyten.

Es ist aber auch möglich, die Stapelelektrode in ihrer Porengröße oder in ihrer Durchlässigkeit, z. B. durch Imprägnierung, so zu gestalten, daß die Elektrolytionen möglichst überhaupt nicht durchgelassen werden.

Die erfindungsgemäßen Plattenstapelzellen bieten einen erhöhten Stoffumsatz und eine verbesserte Selektivität. Daneben beanspruchen diese Stapelzellen nur etwa 20% bis 70% des Stapelraums herkömmlicher Graphitplattenstapelzellen. Die Raumersparnis ist naturgemäß auch mit einer entsprechenden Gewichtersparnis verbunden. Bei den erfindungsgemäßen Zellen spielt die Anströmung der einzelnen Elektroden nur eine untergeordnete Rolle. Es kann somit auch auf aufwendige Maßnahmen zur Verbesserung des Stofftransportes an den Elektroden verzichtet werden, ohne daß die Raum-Zeit-Ausbeute in meßbarem Ausmaß beeinträchtigt würde.

Erfindungsgemäß können die beschriebenen Plattenstapelzellen in Elektrolyseverfahren eingesetzt werden. Ein derartiges Elektrolyseverfahren ist insbesondere zur Oxidation von Aromaten wie substituierten Benzolen, substituierten Toluolen und substituierten oder unsubstituierten Naphthalinen geeignet. Diese Substanzen sind in der flüssigen Elektrolytphase der Plattenstapelzelle enthalten.

Besonders bevorzugt sind Verfahren zur Methoxylierung von 4-Methoxytoluol, p-Xylol, p-tert-Butyltoluol, 2-Methylnaphthalin, Anisol oder Hydrochinondimetylether. Diese Stoffe können mit dem erfindungsgemäßen Verfahren auch acyloxyliert werden.

Ein anderes bevorzugtes Verfahren bezieht sich auf die anodische Dimerisierung von substituierten Benzolen, substituierten Toluolen und substituierten oder unsubstituierten Naphthalinen, wobei die genannten Substanzen vorzugsweise mit C₁- bis C₅-Alkylketten substituiert sind. Vorteilhaft kann das erfindungsgemäße Verfahren auch zur Methoxylierung oder Hydroxylierung von Carbonylverbindungen, insbesondere von Cyclohexanon, Aceton, Butanon oder substituierten Benzophenonen eingesetzt werden.

Ein anderes bevorzugtes erfindungsgemäßes Verfahren ist die Oxidation von Alkoholen oder Carbonylverbindungen zu Carbonsäuren, z. B. von Butindiol zu Acetylendicarbonsäure oder von Propargylalkohol zu Propionsäure.

Die erfindungsgemäßen Plattenstapelzellen können vorteilhafterweise auch zur Funktionalisierung von Amiden, insbesondere von Dimethylformiat zu Methoxymethyl-methylformamid.

Vorteilhaft ist auch die Oxidation, Reduktion oder Funktionalisierung von Heterocyclen mit dem erfindungsgemäßen oben beschriebenen Verfahren. Dabei kann insbesondere Furan zu Dimethoxydihydrofuran oder N-Methylpyrrolidon-2 zu 5-Methoxy-N-methyl-

pyrrolidon-2 umgesetzt werden.

BEISPIELE

Beispiel 1

Methoxylierung von p-Xylol

P-Xylol wurde in einer erfindungsgemäßen Plattenstapelzelle methoxyliert. Die Elektrolysezelle enthielt einen Stapel von 6 Ringscheiben aus dem Graphitfilz Typ RVG 1000 der Firma Deutsche Carbone mit einer Dicke von 3 mm, einem inneren Durchmesser von 30 mm und einem äußeren Durchmesser von 140 mm.

Als Träger für die Elektrolytphase wurden zwischen den Elektrodenplatten Ringscheiben aus Polypropylen-Filternetzen mit einer Dicke von 1,8 mm angebracht. Diese Zelle war in eine Umlaufapparatur integriert, in der die flüssige Elektrolytlösung, bestehend aus einer Mischung von 450 g zu methoxylierendem p-Xylol, 30 g Natriumbenzolsulfonat, sowie 2520 g Methanol umgepumpt wurde.

Die Elektrolyse wurde bei einer Temperatur von etwa 30°C bis 40°C, einer Spannung von 5 V bis 6 V und einer Stromstärke von etwa 5 A durchgeführt bis eine, an der Wasserstoffentwicklung an der Kathode gemessene Strommenge von 4,4 F pro mol p-Xylol eingesetzt war.

Der Stoffumsatz betrug 99%, die Stromausbeute 74% bei einer Ausbeute von 71% Toluylaldehyddimethylacetal und 24% Toluylmethylether.

Beispiel 2

Elektrolyse von Cyclohexanon

Der Plattenstapel bestand aus 12 Ringscheiben aus Graphitfilz des Typs RVG 2003 der Firma Deutsche Carbone mit einer Dicke von 3 mm, einem inneren Durchmesser von 30 mm und einem äußeren Durchmesser von 140 mm. Zwischen den Platten wurde jeweils eine 2 mm dicke Schicht aus Graphitpappe des Typs Sigraflex der Firma Sigrü und ein Filternetz aus Polypropylen angeordnet. Diese Zwischenlagen waren ebenfalls als Ringscheiben ausgebildet.

Der Elektrolyt bestand aus 600 g zu elektrolysierendem Cyclohexanon, 2259 g Methanol, 66 g Wasser, 15 Kaliumiodid und 60 g Kaliumhydroxid (43%ig).

Die Elektrolysetemperatur betrug 15°C bis 20°C, die Stromstärke betrug etwa 5 A. Die Elektrolyse wurde nach einem Ladungstransport von 2,2 F pro mol Cyclohexanon abgebrochen.

Es wurde ein Stoffumsatz von 97% erreicht. Die Ausbeute an 1-Hydroxycyclohexanon-dimethylketal-2 betrug 71%. Dieses Produkt wurde nach Abdestillieren des Methanols und Abtrennen des Leitsalzes in reiner Form durch Destillation erhalten. Dabei betrug der Jodgehalt des Ketals weniger als 1 ppm.

Vergleichsbeispiel zu Beispiel 2

Zum Vergleich wurde Cyclohexanon in einer herkömmlichen Elektrolysezelle mit einem Plattenstapel aus 11 Ringscheiben behandelt. Die Ringscheiben bestanden aus plangeschliffenem massivem Graphit mit einer Welligkeit kleiner 0,1 mm und hatten eine Dicke von 5 mm, einen inneren Durchmesser von 30 mm und einen äußeren Durchmesser von 140 mm. Die Elektro-

denscheiben waren im Abstand von 0,5 mm voneinander in der Zelle angeordnet, wobei der Plattenabstand durch radial angeordnete Polypropylenstreifen aufrecht erhalten wurde, die weniger als 10% der Elektrodenfläche bedeckten.

Die flüssige Elektrolytlösung bestand aus einer Mischung von 675 g zu elektrolysierendem Cyclohexanon, 1965 g Methanol, 45 g Wasser, 2 g NaOCH₃ und 90 g Kaliumiodid.

Die Elektrolyse wurde bei einer Temperatur von etwa 30°C bis 40°C und einer Stromstärke von etwa 5 A durchgeführt bis eine Strommenge von 2,2 F pro mol Cyclohexanon eingesetzt war.

Der Stoffumsatz betrug 98% bei deutlich geringerer Ausbeute von 62% 1-hydroxy-cyclohexanon-dimethylketal-2. Nach dem Abdestillieren von Methanol und dem Abtrennen des Leitsalzes erhält man einen Jodgehalt von etwa 30 ppm in der destillierten Ware.

Die erfindungsgemäße Elektrolysezelle erlaubt somit bei vergleichbarem Energieeinsatz deutlich erhöhte Ausbeuten bei gleichzeitig niedrigerem Einsatz von Kaliumiodid, das zu einem erheblichen Umfang durch das günstigere Kaliumhydroxid ersetzt werden kann. Das führt wiederum zu einem reineren Elektrolyseprodukt.

Beispiel 3

Methoxylierung von p-Xylol

Aufbau und Durchführung des Versuchs entsprach Beispiel 1. Statt reiner Graphitfilz-Elektroden wurden aber Elektroden verwendet, die aus einer als Anode geschalteten Schicht von Graphitfilz des Typs Sigratherm GDF 5 der Firma Sigri und aus einer als Kathode geschalteten Schicht von RA2-Folie zusammengesetzt war.

Die Elektrolyse wurde bei 48°C bis 55°C und einer Stromstärke von etwa 5 A durchgeführt. Sie wurde bei einem Ladungstransport von 7,5 F pro mol p-Xylol abgebrochen. Dabei wurde bei einem Stoffumsatz von 99% eine Ausbeute von 86% Tolylaldehyddimethylacetal erzielt.

Vergleichsbeispiel zu Beispiel 3

Statt den oben bei Beispiel 3 beschriebenen Elektroden wurden massive Graphitplatten-Elektroden verwendet, wie sie oben in dem Vergleichsbeispiel zu Beispiel 2 beschrieben wurden. Die Elektrolysebedingungen entsprachen den in Beispiel 3 beschriebenen.

Bei 99% Stoffumsatz betrug die Ausbeute an Tolylaldehyddimethylacetal 77%. Auch die abgewandelte erfindungsgemäße Elektrodenanordnung bietet somit erhebliche Vorteile bei der Raum-Zeit-Ausbeute des Elektrolyseverfahrens.

Beispiel 4

Methoxylierung von Dimethylformiat (DMF)

Bei dieser erfindungsgemäßen Elektrolysezelle bestand der Plattenstapel aus einer alternierenden Folge von 9 Ringscheiben des Typs RVG 1000 der Firma Deutsche Carbone und 8 Ringscheiben des Typs Nafion 117 der Firma Dupont, die wie in Beispiel 1 beschrieben angeordnet waren. Das Nafion 117 wurde vorher 10 min bei 110°C in DMF gequollen.

Die in die Apparatur vorgelegte Elektrolytflüssigkeit

enthielt 584 g DMF und 2560 g Methanol. Die Elektrolysetemperatur betrug 40°C bis 47°C, die Zellspannung 5 V bis 6 V und die Stromstärke 3 A bis 5 A.

Es wurde ein Umsatz von DMF von etwa 90% erreicht. Nach der Abrotation von Methanol wurde eine (Di)methoxy-DMF-Ausbeute von etwa 70% erzielt. Die Selektivität betrug um die 70%; bei nur leicht verringertem Umsatz konnten Selektivitäten von nahe 90% erreicht werden.

Im Dauerversuch wurde nach einer Laufzeit von 390 Stunden bei einem mittleren Stromeinsatz von 1,66 F pro mol DMF eine mittlere Selektivität von 79% erzielt. Die mittlere Stromausbeute lag bei knapp 90% bezogen auf den DMF-Verbrauch.

Vergleichsbeispiel zu Beispiel 4

Es wurde eine herkömmliche Elektrolysezelle verwendet, wie sie in der Dissertation von R. Grege, Dortmund, 1990, Seiten 8 bis 10, beschrieben ist. Als Zwischenlage zwischen den Elektroden wurde Nafion 117 verwendet, das vorher 10 min bei 110°C in DMF gequollen war.

Die Elektrolysetemperatur betrug 80°C. Die Stromausbeute betrug 95%, der Umsatz von Dimethylformiat lediglich 10%.

Ein zusätzlicher Vorteil der erfindungsgemäßen Zelle gegenüber der von Grege beispielhaft beschriebenen herkömmlichen Zelle ergibt sich aus der einfacheren Montage und Anordnung des Plattenstapels. Vorrichtungen für Halterung und Adjustierung der Graphitplatten entfallen hier vollständig, da die Filzplatten einfach abwechselnd mit Festkörperelektrolyten gestapelt werden. Somit ist die erfindungsgemäße Plattenstapelzelle nicht nur leichter und kleiner, sondern auch wesentlich einfacher aufgebaut.

Patentsprüche

1. Plattenstapelzelle mit seriell geschalteten Stapelelektroden, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens eine Stapelelektrode aus einer Graphitfilzplatte, einer Kohlefilzplatte, einem Gewebe mit Kohlenstoffbedeckter Eduktkontaktfläche oder einem porösen Festkörper mit Kohlenstoffbedeckter Eduktkontaktfläche besteht oder ein solches Material enthält.
2. Plattenstapelzelle nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Wanderung von Elektrolytionen aufgrund des elektrischen Potentialgefälles durch die kohlenstoffhaltige Stapelelektrode behindert oder verhindert wird.
3. Plattenstapelzelle nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die die kohlenstoffhaltige Stapelelektrode berührende Elektrolytphase ein Festkörperelektrolyt, insbesondere eine Ionenaustauschermembran ist.
4. Plattenstapelzelle nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase keine freien Leitungionen oder nur noch geringe Mengen von freien Leitungionen enthält.
5. Plattenstapelzelle nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens zwei Stapelelektroden durch einen elektrolytgefüllten Festkörper, insbesondere ein elektrolytgefülltes Gewebe oder Netz oder ein Diaphragma, getrennt sind.
6. Plattenstapelzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die

kohlenstoffhaltige Stapelelektrode eine zusätzliche, die Wanderung der Elektrolytionen senkrecht durch diese Stapelelektrode behindernde oder verhindernde Schicht, insbesondere aus Graphitpappe, enthält.

7. Verwendung einer Plattenstapelzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche in einem Elektrolyseverfahren.

8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle aromatische Verbindungen, insbesondere substituierte Benzole, substituierte Toluole oder substituierte oder unsubstituierte Naphthaline enthält und diese oxidiert werden.

9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle 4-Methoxytoluol, p-Xylol, p-tert.-butyltoluol, 2-Methylnaphthalin, Anisol oder Hydrochinondimethylether enthält und diese alkoxyliert oder acyloxyliert werden.

10. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle substituierte Benzole, substituierte Toluole oder substituierte oder unsubstituierte Naphthaline enthält und diese anodisch dimerisiert werden, wobei die Aromaten vorzugsweise C₁- bis C₅-Alkyl-substituiert sind.

11. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle Carbonylverbindungen, insbesondere Cyclohexanon, Aceton, Butanon oder substituierte Benzophenone enthält und diese methoxyliert oder hydroxyliert werden.

12. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle Alkohole oder Carbonylverbindungen enthält und diese zu Carbonsäuren oxidiert werden, z. B. Butindiol zu Acetylendicarbonsäure oder Propargylalkohol zu Propiolsäure.

13. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle Amide enthält und diese funktionalisiert werden, wobei insbesondere Dimethylformiat zu Methoxymethyl-methylformamid funktionalisiert wird.

14. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die flüssige Elektrolytphase in der Plattenstapelzelle Heterocyclen enthält und diese oxidiert, reduziert oder funktionalisiert werden, wobei insbesondere Furan zu Dimethoxydihydrofuran oder N-Methylpyrrolidon-2 zu 5-Methoxy-N-methylpyrrolidon-2 umgewandelt wird.

55

60

65

- Leerseite -

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images
problems checked, please do not report the
problems to the IFW Image Problem Mailbox**